

Formation of Twinnings and Microtextures in Quartz Crystals and Chalcedony (水晶及びめのう の双晶と微細組織の形成)

著者	陸 太進
号	1131
発行年	1989
URL	http://hdl.handle.net/10097/25020

氏名・（本籍）	ルー 陸	タイ 太	ジン 進
学位の種類	理	学	博 士
学位記番号	理博第	1 1 3 1	号
学位授与年月日	平 成 元 年	3 月	24 日
学位授与の要件	学位規則第 5 条第 1 項該当		
研 究 科 専 攻	東北大学大学院理学研究科 (博士課程) 地学専攻		
学位論文題目	Formation of Twinnings and Microtextures in Quartz Crystals and Chalcedony (水晶及びめのうの双晶と微細組織の形成)		
論文審査委員	(主査) 教 授 青 木 謙一郎		
	教 授 大 沼 晃 助 教 授 大 本 洋 助 教 授 秋 月 瑞 彦		

論 文 目 次

Contents

Abstract

Introduction

Part I . Brazil twinings in natural and synthetic amethyst crystals, their microtextures and origin

1. Introduction
2. Brazil twinings in natural amethyst crystals with Brewster fringes
3. Microtextures due to Brazil twinning observed in natural amethyst crystals without Brewster fringes
4. Microtextures due to Brazil twinings in natural quartz crystals of epithermal origin
5. Generation of Dauphine and Brazil twinings in synthetic amethysts

6. Summaries and discussions — possible generation mechanisms of Brazil and Dauphine twinnings

Part II. Microtextures of chalcedony

1. Introduction
2. Microtextures of Lining type chalcedony (CH-L)
3. Microtextures of horizontal type chalcedony (CH-H)
4. Summaries and discussions on the formation of microtextures of chalcedony

Conclusions

論文内容要旨

本論文は二つの部分より成り、第一部は熱水溶液から生成した天然及び合成紫水晶結晶中の双晶組織、特に、ブラジル双晶とそれに関する微細組織の観察結果及びその成因を検討した部分である。第二部は火山岩の洞穴に産出するカルセドニー（玉髄）の微細組織及びその成因を検討した結果を述べた部分である。

中低温熱水性水晶、特に、紫水晶とカルセドニーのブラジル双晶、ブラジル双晶に関する微細組織、ドフィーネ双晶及びカルセドニー中に偏光顕微鏡下で見られる組織は鉱物学者、物理学者、宝石、工業分野の人々に興味を持たれ、十八世紀から数多くの理論的・実験的研究が行われて来たが、成長中にできたブラジル双晶とドフィーネ双晶及びその他の微細組織の形成機構については今まであまり明らかにされていなかった。本研究ではこの点に着目して、結晶成長の立場から天然及び合成の紫水晶、カルセドニー中のブラジル双晶、ドフィーネ双晶、及びその他の微細組織特徴を明示し、そのでき方及び中低温熱水溶液中のシリカの結晶化作用について議論した。上記の鉱物及びそれらの組織の特徴は多種の光学顕微鏡観察（位相差顕微鏡、微分干渉顕微鏡、二光束干渉顕微鏡、偏光顕微鏡）、電子顕微鏡観察（走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡、分析電子顕微鏡）、X線回折、加熱実験及び腐食試験により検討された。

第一部は6つの章より成る。第一章は序論で、水晶中のブラジル双晶に関する従来の研究結果のクリティカル・レビューを行い、問題点を指摘した。ブラジル双晶に関する十分な研究解析が行われているのは、各種の光学顕微鏡、X線トポグラフィ、透過型電子顕微鏡による識別方法、干渉成像原理、双晶境界の幾何学方位関係のみで、具体的に各種水晶中（紫水晶、脈石英）のブラジル双晶の空間分布の特徴、ブラジル双晶と他の欠陥間の関係、ブラジル双晶の発生条件、発生源などの形成機構に関する基本的問題点についてはあまり明らかにされていなかった。

第二章は偏光顕微鏡下で観察される典型的な干渉パターン——ブラウスターフリンジ（Brewster fringes）——を持つ天然紫水晶のブラウスター・フリンジとブラジル双晶との関係、ブラウスター・フリンジの発生及び発達についての観察結果を述べた。それによると、天然紫水晶中のブラウスター・フリンジは数多くの細かいブラジル双晶の集合により成り、これらの細かいブラジル双晶は一つの複雑な三次元的連続的、かつ湾曲した面になる。見かけ上はブラウスター・フリンジの方向とジグザグ構造中の長いブラジル双晶境界の方向と異なる片面では、McLaren and Pitkethly (1982)が提示したジグザグ構造を示しているが、ブラウスター・フリンジの方向とジグザグ構造中の長いブラジル双晶境界の方向と一致している片面では、ループ状のブラジル双晶ラメラを示している。ジグザグブラジル双晶境界の折れ曲る箇所にはstair-rod 転位が存在している。新しいブラウスター・フリンジは結晶の柱面に近い所には数多くの細かいブラジル双晶ラメラがあり、そこからブラウスター・フリンジが選択的に発生して、最後まで成長して行って、as-grownな表面には“finger print pattern”をつくる。

第三章はブラウスター・フリンジを含まない一般的な天然紫水晶結晶中のブラジル双晶の分布特徴について調べた結果を述べた章である。ブラウスター・フリンジを含まない天然紫水晶のブラジル双晶の分布はブラウスター・フリンジを持つ紫水晶と著しく異なり、細かいブラジル双晶を含む層と含まない層の繰返しを示している。ブラジル双晶ラメラは、ほとんど一つの層内にとどまり、新しい成長層に引き続いて成長しない。合成紫水晶の実験結果を参照すると、ブラウスター・フリンジを含まない天然紫水晶は、ブラウスター・フリンジを持つものより、より変動した成長環境で形成したと考えられる。

第四章はより一般的な中低温熱水金属鉱床中の脈石英中のブラジル双晶の特徴と、それに関連した微細組織について調べた結果を検討する章である。結晶の中心部分では欠陥が少ないが、周囲部には数多く細かいブラジル双晶が発達している。ブラジル双晶は結晶表面に沈着した微小な固体包有物(黄鉄鉱, 黄銅鉱など)から発生して、結晶の as-grown な表面まで引き続き成長する。流体包有物が双晶境界に沿って配列しており, split 成長を起す一つの重要な原因だと考えられる。ブラジル双晶境界は細かいジグザグ構造を持っており, その折れ曲がる箇所では stair-rod 転位が観察され, 転位の(0001)セクションへの投影方向は $[10\bar{1}0]$, $[\bar{1}100]$ 及び $[01\bar{1}0]$ で, 偏光顕微鏡下でよく見られる繊維組織の方向と一致している。従って, 偏光顕微鏡下でよく観察される脈石英の(0001)セクションでの $[10\bar{1}0]$, $[\bar{1}100]$ 及び $[01\bar{1}0]$ 方向の繊維組織はブラジル双晶の折れ曲がる箇所に存在している stair-rod 転位により起きた干渉パターンだと考えられる。また, 結晶の最外層では, しばしば $1\mu\text{m}-5\mu\text{m}$ 大の石英微粒子の集合体が見られる。

第五章は人工合成紫水晶結晶中のブラジル双晶の発生条件, 発生源, 空間分布について調べた結果を述べた章である。ブラジル双晶とドフィーネ双晶の発生は, 溶液中にFeを含むことと成長条件(温度, 成長速度)の変動が存在するという二つの条件を満足しなければならない。成長中に成長温度の変動がはげしいほど, 発生したブラジル双晶の量が多い。成長速度が大きい $\langle 0001 \rangle$, $\langle 11\bar{2}1 \rangle$, $\langle \bar{1}\bar{1}20 \rangle$ セクションにはブラジル双晶とドフィーネ双晶は観察されなかった。成長速度が遅い $\langle 01\bar{1}1 \rangle$, $\langle 11\bar{2}0 \rangle$, $\langle \bar{1}\bar{1}21 \rangle$, $\langle 10\bar{1}1 \rangle$, $\langle 10\bar{1}0 \rangle$, $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ セクションにはブラジル双晶とドフィーネ双晶が観察される。 $\langle 10\bar{1}1 \rangle$ と $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ セクションにはブラジル双晶が最も多い。 $\langle 01\bar{1}1 \rangle$ セクションにはドフィーネ双晶が最も多い。ブラジル双晶とドフィーネ双晶はFeが富んでいる固体包有物の歪から直接ないし間接的に発生しており, ブラジル双晶は比較的小さい固体包有物または固体包有物から発生した転位から発生している。ドフィーネ双晶は比較的大きな固体包有物から直接発生している。固体包有物は針鉄鉱結晶だと考えられる。

第六章は以上の観察結果のまとめとそれに基づく可能なブラジル双晶の成長機構を議論した章である。Feを含む溶液中の温度などの成長条件の変動により, Feに富む鉱物が成長している水晶表面に沈着する。その周囲に歪が生じる。固体包有物の周囲の歪場がある臨界値を超えると, ドフィーネ双晶が生じる。一方, 歪場が比較的小さい場合には, そこから直接ブラジル双晶ないし転位が発生するし, その転位からもブラジル双晶が発生できる。

第二部は火山岩の洞穴に産出するカルセドニーの微細組織を調べた結果とその成因を議論する部分である。この部分は四章より成る。第一章は序論で、カルセドニーの微細組織に関する従来の研究結果のクリティカル・レビューを行い、問題点を指摘した。典型的なアゲート・ジェードには外から中心部に向かって、リーニング・タイプ・カルセドニー、粗粒石英、水平層カルセドニーに分けられている。偏光顕微鏡下で見られるリーニング・タイプ・カルセドニーの繊維構造、繊維の伸長方向に垂直な方向に均一な間隔を持つストリエーションパターン、周期的なジグザグな消光パターン (Runzel bandings), リーニング・タイプ・カルセドニーから粗粒石英への移り変わり関係及び水平層カルセドニー中の微細組織についての詳細な研究は少なく、結晶成長の立場からはカルセドニー微細組織の形成機構の解析が行われていなかった。

第二章は偏光顕微鏡下で観察されるリーニング・タイプ・カルセドニーの組織を取り扱う章である。それによると、一つの光学オーダーの繊維では数本～数十本の電子顕微鏡オーダーの繊維が互いに平行に配列している。その電子顕微鏡オーダーの繊維は 80 \AA ～ 1000 \AA 石英微結晶が水晶の $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ ないし $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ 方向に規則的積み重なりによりできたので、石英微粒子のc軸方向は繊維の伸長方向に垂直である。石英微粒子が積み重なる時、electrostatic forceが重要な役割を果たしていると考えられる。

繊維の垂直方向に観察されている周期的なストリエーション・パターンは石英微粒子の細かい部分と比較的粗い部分の繰返し配列より成り、一つのストリエーション内には成長方向に沿って粒子サイズが徐々に増大する。リーニング・タイプ・カルセドニーと粗粒石英結晶の境界には、ストリエーションに類似な現象が観察された。従って、カルセドニーと粗粒石英結晶は単なるサイズの絶対値の違いだけで、本質的には同じである。リーニング・タイプ・カルセドニーを形成する時は、周期的な成長条件の変動が激しいため、周期的な粒子サイズの変化によりできたストリエーションが生じる。引き続いての粗粒紫水晶を形成する時は、成長条件の周期的な変化がカルセドニーを形成する時ほど激しくなく、ブラジル双晶を含む層と含まない層が繰返し構造をつくるものと考えられる。

周期的なジグザグな消光パターン (Runzel bandings) は Universal Stage を使って 360° 回転しても、ずっと消光のままなので、従来言われているように、繊維軸のまわりを結晶のc軸が周期的にねじれながら生じたものではない。エッチング試験、加熱実験及び分析電子顕微鏡観察により、消光バンドの箇所に Fe, H_2O などの不純物が濃集していることが解った。従って、繊維の成長方向に垂直な方向に現われた周期的なジグザグ消光バンドは成長中に Fe, H_2O などの不純物が集中的に分布していることにより生じた干渉パターンであると考えられる。

第三章は水平層カルセドニーの微細組織を取り扱った章である。水平層カルセドニーには自形石英微結晶層と石英の球晶層が存在している。粒子のサイズと微細組織が異なるため層理をつくる。球晶は核部分と放射状部分により構成されている。核は大きく、数多くの異なる方位を持つ $1\text{ }\mu\text{m}$ 大の石英微粒子よりなり、一方、放射状部分は比較的粗粒な $(10\text{ }\mu\text{m} \pm)$ rhombohedralの面が発達している石英ラメラよりなる。球晶は agitated な溶液で生じたと考えられる。

第四章はカルセドニーの微細組織を調べた結果のまとめと全体アゲート・ジェートの形成を議論した章である。本研究により、アゲート・ジェートは石英構造を持ちポリマーが存在している低温熱水溶液から形成されたことが推測される。一方、リーニング・タイプ・カルセドニーは主にポリマーの吸着によってつくられ、水平層カルセドニーはポリマーの集合と重力沈殿によりできたものと考えられる。

論文審査の結果の要旨

熱水溶液からできた水晶、玉髄中の双晶組織及び玉髄の光学組織について数多くの研究が行われて来たが、成長中に生じるブラジル双晶、ドフィーネ双晶及びその他の微細組織の空間分布、発生条件、形成機構については、いままであまり明らかにされていなかった。本研究ではそれらの特徴を詳細に検討し、その形成機構を考察した。

第1章には紫水晶中のブラジル双晶についての検討結果を述べた。天然紫水晶中のブラウスター・フリンジは多数な細かいブラジル双晶の集合よりなる。見かけ上、片方ではジグザグ構造を示しているが、もう片方ではループ状のブラジル双晶ラメラを示している。ブラウスター・フリンジを含まない天然紫水晶のブラジル双晶の分布はブラウスター・フリンジを持つものと著しく異なり、細かいブラジル双晶を含む層と含まない層の繰返しを示している。合成紫水晶の実験により、ブラジル双晶とドフィーネ双晶の発生は溶液中に鉄を含むことと成長条件の変動が存在するという二つの条件を満足しなければならない。ブラジル双晶は富鉄な固体包有物または固体包有物から生じる転位から発生している。ドフィーネ双晶は比較的大きな固体包有物から直接発生している。従って、鉄を含む溶液に温度などの条件の変動により、富鉄鉱物が水晶表面に沈着する。その周囲の歪場がある臨界値を超えると、ドフィーネ双晶が生じる。一方、歪場が比較的小さい場合には、そこから直接ブラジル双晶ないし転位が発生し、その転位からもブラジル双晶が発生できると考えられる。

第2章は玉髄中の微細組織についての検討結果を述べた。リーニング・タイプ玉髄の光学オーダーの繊維は数本～数十本の電顕オーダー繊維が互いに平行に配列している。その電顕オーダーの繊維は800～1000 Å 石英微結晶が水晶の $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ ないし $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ 方向に規則的積み重なりによりできたので、石英微粒子のc軸方向は繊維に垂直している。周期的なジグザグな消光パターンは鉄、水などの不純物の濃集により生じた干渉パターンである。周期的なストリーションパターンは細かい石英微粒子と比較的粗い粒子の繰返し配列よりなる。水平層玉髄には自形石英微結晶層と石英球晶層が存在している。球晶の放射状部分は比較的粗粒（10 μm 土）な rhombohedral の面が発達している石英ラメラより成る。玉髄の微細組織の観察により、めのは石英構造を持ちポリマーが存在している低温熱水溶液から形成され、リーニング・タイプ玉髄は主にポリマーの吸着によりつくられ、水平層玉髄はポリマーの集合と重力沈殿によりできたものと説明できる。

以上本論文は陸太進が自立して研究活動を行うに必要な高度の研究能力と学識を有することを示している。よって陸太進提出の論文は理学博士の学位論文として合格と認める。